

氏名	朝倉 衝
授与した学位	博士
専攻分野の名称	理学
学位授与番号	博甲第2893号
学位授与の日付	平成17年 3月25日
学位授与の要件	自然科学研究科基盤生産システム科学専攻 (学位規則第4条第1項該当)
学位論文の題目	混合原子価化合物 $\text{CeFe}_2$ における Ce L 端吸収・発光分光の 磁気円二色性
論文審査委員	教授 原田 勲    教授 町田 一成    教授 小林 達生

#### 学位論文内容の要旨

希土類 - 遷移金属合金では、希土類5d電子は磁性を担う希土類4f電子と遷移金属3d電子との相互作用を媒介しているため、希土類5d状態を調べることはこのような系の磁性を知る上で重要なことである。希土類L端 (2p→5d) のX線吸収分光 (XAS) における磁気円二色性 (MCD) は、元素と殻とを特定して観測できる内殻励起分光であり、希土類5d軌道の電子状態、磁気状態を選択的に調べるための最も有効な方法である。ここでMCDとは、磁化した物質の左右円偏光X線に対する吸収係数の差であり、遷移先軌道の磁気分極を反映している。しかし希土類L端XASには、2p内殻正孔の寿命が短いためにスペクトル幅が広くなり、微細構造は覆い隠されてしまうという欠点もある。他方、希土類L端吸収・M端発光 (2p→5d; 3d→2p) の共鳴X線発光分光 (RXES) の終状態は3d内殻正孔であり、2p内殻正孔と比べて寿命が長いためにスペクトル幅も比較的狭くなっている。よってXASでは観測するのが難しかったスペクトルの細かい構造もあらわれてくると期待される。本研究では混合原子価化合物 $\text{CeFe}_2$ を題材とし、Ce L端XASのMCD (MCD-XAS) スペクトルを解析するモデルを構築し、実験結果と比較することによって、MCD-XASスペクトルと系の電子状態、磁気状態との対応関係を明らかにした。このモデルを拡張してRXESのMCD (MCD-RXES) スペクトルについても理論計算を行い、RXESにおける励起スペクトルの手法をMCD-RXESに適用することによって、高分解能のMCD-XASスペクトルが得られることを示した。そして $\text{CeFe}_2$ では、従来の分光法では観測するのが難しかった4f<sup>2</sup>電子配置の寄与が、高分解能のMCD-XASには明瞭にあらわれることを示した。各4f電子配置の寄与は基底状態の価数などを反映しており、それらを正確に把握することは重要である。このように、L端吸収・発光のMCDによって、5d磁気状態だけでなく、4fの混合原子価状態についても詳しい情報が得られることがわかった。

## 論文審査結果の要旨

最近著しい進歩を見せるシンクロトロン放射光技術は、広い意味の光による磁性体研究に新しい側面を拓き、実験及び理論両面から活発に研究されている。本論文では、混合原子価化合物  $\text{CeFe}_2$  における  $\text{Ce}$   $L$  端吸収・発光分光の磁気円二色性(MCD)を理論的に研究し、その機構を明らかにすると共に実験で得られたスペクトルとの定量的な比較を行っている。

ラーベス化合物 $\text{CeFe}_2$ では混合原子価と呼ばれる現象が起き、 $f$ 電子数の異なった状態が量子力学的に混合するため、それを反映した特徴的な吸収スペクトルが現れる。この様な系の吸収スペクトルのMCDを世界で初めて理論的に研究し、スペクトルを解析することにより混合原子価に関する情報ばかりでなく鉄3d電子と希土類5d電子との軌道混成に関する情報、内殻正孔と4f電子や励起された5d電子との多体効果に関する情報等も得られることを示している。一方、私たちの研究室が近年行ってきた希土類  $L$  吸収端の MCD スペクトルの研究にも寄与し、伝導電子系をtight binding 近似を用いて計算する手法を確立させ、実験結果との定量的な比較を可能にした。

更に、本論文での研究は、第3世代放射光施設の発展と相まって発展しつつある  $L$  吸収過程を含む2次の光学過程にも及んでいる。2次の光学過程の計算は、中間状態および終状態での2重和に加え、終状態での電子間相互作用の取り扱いの複雑さにより、大変重い計算となる

朝倉君は  $L$  吸収過程に続くコヒーレントな  $3d2p$  発光過程での MCD スペクトルを実験結果と定量的に比較可能な計算にすることに初めて成功した。また、有る条件下では発光 MCD スペクトルが吸収MCDスペクトルの微細構造を再現することを予言し、新しい実験を促している。この様に、朝倉君の研究は今後この分野に大いに影響を与えるものと期待される。

以上のような、混合原子価化合物  $\text{CeFe}_2$  にたいする新しい吸収機構の検証や共鳴発光の MCDのような新しい実験手段に対する定量的計算手法の確立は、この分野の研究者に強い影響を与え、実験技術の更なる発展と共に新しい二次過程の実験に重要な指針を与えるであろう。このように、本研究はこの研究分野に重要な寄与をしたと認められる。

本論文の内容、論文発表会、参考論文を総合的に審査した結果、本論文は博士学位論文に値するものと認定する。